

16-
\$6-

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.

Gastight, sealed metal oxid /metal hydride storage battery

Patent Number: ☐ US5639569
Publication date: 1997-06-17
Inventor(s): KOEHLER UWE (DE); CHEN GUANGSEN (SG); LINDNER JUERGEN (SG)
Applicant(s):: VARTA BATTERIE (DE)
Requested Patent: ☐ EP0698937
Application Number: US19950506836 19950725
Priority Number(s): DE19944426958 19940729
IPC Classification: H01M10/34
EC Classification: H01M4/24B, H01M10/34D, H01M10/52
Equivalents: CN1071942B, CN1123475, ☐ DE4426958, ☐ JP8055635, SG45109

Abstract

A gastight, sealed metal oxide/metal hydride storage battery, in particular, a nickel/metal hydride button cell, includes an auxiliary electrode with an active material composed of the same hydrogen storage alloy as that of the negative electrode with which the auxiliary electrode is electrically associated. As a result, the auxiliary electrode can maintain both oxygen consumption as well as hydrogen consumption (in the event of overcharging or polarity reversal of the cell). High gas consumption rates in the event of overcharging and polarity reversal are achieved with a strongly hydrophobic adjustment of the auxiliary electrode and a relatively weakly hydrophobic or hydrophilic adjustment of the negative electrode (by means of hydrophobic or hydrophilic binder additions, respectively), and by adding a highly conductive metal powder (Cu or Ni) to the mass of the negative electrode. Also achieved is a good discharge capacity, even at high currents of up to 2 CA.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

(19)



Europäisches Patentamt

European Patent Office

Office européen des brevets



(11)

EP 0 698 937 A1

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(43) Veröffentlichungstag:
28.02.1996 Patentblatt 1996/09

(51) Int. Cl.⁶: **H01M 10/52, H01M 10/34,
H01M 4/24**

(21) Anmeldenummer: **95106832.9**

(22) Anmeldetag: **05.05.1995**

(84) Benannte Vertragsstaaten:
CH DE FR GB LI NL

(30) Priorität: **29.07.1994 DE 4426958**

(71) Anmelder: **VARTA Batterie Aktiengesellschaft
D-30419 Hannover (DE)**

(72) Erfinder:

- Köhler, Uwe, Dr.
D-65779 Kelkheim (DE)
- Chen, Guangsen, Dr.
Singapore 1646 (SG)
- Lindner, Jürgen, Dr.
Singapore 1646 (SG)

(74) Vertreter: **Kalser, Dieter Ralf, Dipl.-Ing.
D-65779 Kelkheim (DE)**

(54) **Gasdicht verschlossener Metalloxid/Metallhydrid-Akkumulator**

(57) In einem gasdicht verschlossenen Metalloxid/Metallhydrid-Knopfakkumulator, insbesondere einer Nickel/Metallhydrid-Knopfzelle, besteht das aktive Material einer Hilfselektrode aus der gleichen Wasserstoffspeicherlegierung wie dasjenige der negativen Elektrode, mit der die Hilfselektrode elektrisch kurzgeschlossen ist. Die Hilfselektrode kann dadurch sowohl den Sauerstoffverzehr als auch bei Polumkehr der Zelle den Wasserstoffverzehr unterhalten. Durch eine stark hydrophobe Einstellung der Hilfselektrode und eine nur

schwach hydrophobe oder hydrophile Einstellung der negativen Elektrode mittels hydrophober bzw. hydrophiler Binder-Zusätze sowie durch Beimischung hochleitender Metallpulver (Cu oder Ni) zur Masse der negativen Elektrode werden eine hohe Gasverzehrrate bei Überladung und Umpolung und gleichzeitig eine gute Entladekapazität selbst bei hohen Strömen (bis zu 2CA) erzielt. Der Zellinnendruck einer 250mAh-Knopfzelle geht weder bei Überladung noch bei Überentladung mit 0,2CA (=50mA) über 3 bar hinaus und ist damit unkritisch.

EP 0 698 937 A1

Beschreibung

Die Erfindung betrifft einen gasdicht verschlossenen Metalloxid/Metallhydrid-Akkumulator mit im Zellengehäuse angeordneter positiver Elektrode, die in Metalloxid umfaßt, einer negativen Elektrode, die eine Wasserstoffspeicherlegierung umfaßt, mit einem zwischen positiver und negativer Elektrode angeordneten Separator, der einen alkalischen Elektrolyten enthält, sowie mit einer den Sauerstoffverzehr unterhaltenden, in elektrisch leitendem Kontakt zur negativen Elektrode stehenden Hilfselektrode.

Ein vorzugsweises Anwendungsgebiet der Erfindung sind Knopfzellen des Ni/Metallhydrid-Typs aufgrund ihrer Wirtschaftlichkeit und ihres bewährten Einsatzes in netzunabhängigen Geräten. Allerdings reicht ihre Belastbarkeit mit hohen Strömen nicht an diejenige von Rundzellen heran. Als Grund mag eine Rolle spielen, daß die Leiffähigkeit der negativen Knopfzellen-Elektrode relativ gering ist. Die geringere Leiffähigkeit ist durch den Anteil eines Kunststoffbinders an der Massemischung bedingt, der vorzugsweise aus PTFE besteht und bis zu 10% betragen kann. Andererseits ist der Zusatz des Bindemittels aus Gründen der mechanischen Festigkeit notwendig. Er erteilt der Masse außerdem einen hydrophoben Charakter und schafft die Voraussetzung für einen hinreichenden Gasverzehr bei Überladung und Umpolung. Wiederaufladbare, gasdichte Metalloxid/Hydrid-Knopfzellen nach dem eingangs formulierten Gattungsbegriff müssen sowohl überladefähig als auch umpolsicher sein.

Während der Überladung wird an der positiven Elektrode Sauerstoff erzeugt, welcher zur Vermeidung eines unzulässig hohen Innendrucks verzehrt werden muß. Das für diesen Zweck geeignete Mittel ist eine Hilfselektrode, gewöhnlich aus einer Mischung von Ruß, Graphit und PTFE bestehend, welche sich auf der Rückseite der negativen Hauptelektrode befindet und mit dieser elektrisch kurzgeschlossen ist. Der Mechanismus des Sauerstoffverzehrs läßt sich durch die Gleichung (1) $O_2 + 4e^- + 4 H_2O = 4 OH^-$ beschreiben.

Eine Metalloxid/Hydrid-Knopfzelle mit einer Hilfselektrode für den Sauerstoffverzehr läßt sich beispielsweise der DE-OS 3929306, Figur 4, entnehmen.

Gelangt ein Metalloxid/Hydrid-Akkumulator jedoch nach erschöpfender Entladung der positiven Elektrode, welche im allgemeinen die Entladung begrenzt, in die Polumkehr, so entwickelt nunmehr die positive Elektrode Wasserstoff, welcher direkt von der negativen Elektrode unter Umsetzung zu Metallhydrid aufgenommen werden kann. Dies kann jedoch nur an einer direkt mit der Gasphase in Verbindung stehenden metallischen Oberfläche geschehen. Ein Flüssigkeitsfilm an der Metalloberfläche behindert die Wasserstoffaufnahme erheblich. Die Anwesenheit eines hydrophoben Bindemittels kann den Elektrolyten von Teilen der Elektrodenoberfläche fernhalten und so das Eindringen des Wasserstoffs in das Innere der negativen Masse erleichtern.

Aus der DE-OS 4029503 ist auch in alkalischer Akkumulator mit einer negativen Metallhydrid-Elektrode bekannt, deren aktiver Masse eigens für die Oxidation des bei der Polumkehr anfallenden Wasserstoffs spezielle Katalysatoren aus Raney-Nickel oder Raney-Silber zugesetzt sind.

Gleichwohl bleibt der mit dem Einsatz eines hydrophoben Bindemittels verbundene Nachteil einer verminderten elektrischen Leiffähigkeit bestehen. Einerseits gewährleistet der Binder bei Masse-Elektroden den Zusammenhalt und die Hydrophobizität des Pulverpreßlings, andererseits ist seine Wirkung diejenige eines elektrischen Isolators, so daß ein guter Schutz gegen Polumkehr und eine gute Strombelastbarkeit sich gegenseitig ausschließen.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, einen Akkumulator, insbesondere in Form einer Knopfzelle, für das alkalische Metalloxid/Wasserstoffsyste m verfügbar zu machen, der ohne Einschränkung seiner gasdichten Funktion auch mit hohen Strömen betrieben werden kann.

Die Aufgabe wird erfindungsgemäß mit einem Akkumulator gelöst, wie er durch Patentanspruch 1 definiert ist.

Erfindungsgemäß übernimmt die in einer Metalloxid/Metallhydrid-Zelle üblicherweise für den Sauerstoffverzehr vorgesehene Hilfselektrode im Falle einer Polumkehr auch die rasche Umsetzung des Wasserstoffs, da sie wie die negative Hauptelektrode eine Wasserstoffspeicherlegierung als Hauptkomponente aufweist und mit der negativen Elektrode der Zelle elektrisch leitend verbunden ist und insbesondere an der Rückseite der negativen Hauptelektrode unmittelbar anliegt. Die erfindungsgemäße Hilfselektrode kann vorteilhaft in Rundzellen und prismatischen Zellen verwendet werden, besonders geeignet ist sie für den Einsatz in Knopfzellen.

Die erfindungsgemäße Hilfselektrode wird durch Mischen der besagten Wasserstoffspeicherlegierung mit einem kohlenstoffhaltigen und zugleich hydrophobierenden Material, vorzugsweise einer Mischung aus Graphit, Ruß und PTFE, in einer hochtourigen Messermühle hergestellt. Das resultierende Gemisch ist äußerst feinkörnig und homogen. Hierdurch wird einerseits für eine Vielzahl von Dreiphasengrenzen gesorgt, welche für den Sauerstoffverzehr benötigt werden, andererseits werden auch dem Wasserstoff zahlreiche Oberflächen ohne Elektrolytbedeckung dargeboten, die es ihm ermöglichen, rasch in die Legierungspartikel einzudringen.

Es hat sich erfindungsgemäß ferner als vorteilhaft erwiesen, die negative Hauptelektrode aus einem Pulver herzustellen, welches neben der Wasserstoffspeicherlegierung als dem wesentlichen Bestandteil noch Nickelmetall oder Kupfermetall in Pulverform als hochleiffähige Komponenten enthält. Als alternatives Leitmittel kann auch Graphit eingesetzt werden.

Weiterhin kann die Elektrodenmischung zur Verbesserung der mechanischen Stabilität des Preßlings ein

Bindemittel enthalten, welches jedoch im Gegensatz zu dem in der Hilfslektrode verwendeten Binder hydrophil ist oder zumindest nur einen schwach ausgeprägten hydrophoben Charakter besitzt, z.B. Polyvinylalkohol oder Polyethylen.

Durch die Verbindung einer hydrophoben, aus einer Wasserstoffspeicherlegierung gebildeten Hilfselektrode mit einer negativen Hauptelektrode aus der gleichen Wasserstoffspeicherlegierung, die durch Metallzusätze ein hohes elektrisches Leitvermögen und aufgrund eines hydrophilen Bindemittelzusatzes einen zumindest nur schwach hydrophoben Charakter besitzt, liegt eine Elektrodenkombination vor, welche beide Fähigkeiten, nämlich Belastbarkeit mit hohen Strömen und Verhinderung eines Druckaufbaus nach einer Polumkehr, auf sich vereinigt.

Insbesondere erlaubt hierbei die neue Hilfselektrode -im Gegensatz zu den in konventionellen Ni/Hydrid- und Ni/Cd-Zellen vorhandenen Sauerstoffverzehrelektroden- die Entfernung sowohl des Sauerstoffs als auch des Wasserstoffs aus der Gasphase. Für diese Doppelfunktion der erfindungsgemäßen Hilfselektrode ist ein starkes und dauerhaftes hydrophobes Verhalten unerlässlich.

Ihr liegt eine Massemischung folgender Zusammensetzung zugrunde: 0 bis 20 Gew.% Graphit, 0 bis 20 Gew.% Ruß, 0,5 bis 10 Gew.% PTFE, Rest bis 100 Gew.% Wasserstoffspeicherlegierung. Eine besonders vorteilhafte Mischung setzt sich aus 0 bis 4 Gew.% Graphit, 1 bis 3 Gew.% Ruß, 1 bis 4 Gew.% PTFE, Rest bis 100 Gew.% Wasserstoffspeicherlegierung zusammen.

Zur Herstellung der negativen Hauptelektrode eignen sich die folgenden Massemischungen:

1. 10 bis 50 Gew.%, vorzugsweise 20 bis 40 Gew.% Cu- oder Ni-Pulver, 0 bis 10 Gew.%, vorzugsweise 1 bis 4 Gew.% hydrophiler Binder, Rest bis 100 Gew.% Wasserstoffspeicherlegierung oder

2. 0 bis 20 Gew.%, vorzugsweise 10 bis 15 Gew.% Graphit, 0 bis 10 Gew.%, vorzugsweise 0,5 bis 4 Gew.% hydrophiler Binder, Rest bis 100 Gew.% Wasserstoffspeicherlegierung

Der Gehalt an Legierungsmetall liegt bei beiden alternativen Massemischungen (Metallpulver oder Graphit als Leitmittel) etwa zwischen 70 und 95 Gew.%.
 Als Wasserstoffspeichermaterial kommen Legierungen vom LaNi_5 -Typ oder TiNi -Typ infrage. Bevorzugt sind Legierungen des LaNi_5 -Typs, bei denen Lanthan und/oder andere Seltenerdelemente die Mischmetallkomponente von MmNi_5 -Legierungen bilden. Eine beispielhafte Legierung hat die Zusammensetzung $\text{MmNi}_{4,3-x}\text{Co}_x\text{Mn}_{0,3}\text{Al}_{0,4}$, wobei $0,2 < x < 0,7$.

Typische Massemischungen für die positive Elektrode enthalten neben Nickelhydroxid metallisches Nickel und Kobalt, Graphit sowie Kobaltoxid. Diese Zusatzstoffe wirken vorwiegend als Leitmaterial; das Kobaltoxid

sorgt zusätzlich für eine Erhöhung der Sauerstoffüberspannung an der positiven Elektrode und damit für eine Erhöhung der Ladeeffektivität.

Der Gegenstand der Erfindung ist im folgenden am Beispiel einer Knopfzelle anhand der Figuren näher erläutert.

Figur 1 zeigt eine Ni/Hydrid-Knopfzelle gemäß der Erfindung.

Figur 2 zeigt die Oberflächenstruktur einer Hilfselektrode gemäß der Erfindung in einer Vergrößerung.

Figur 3 zeigt Entladekapazitäten erfindungsgemäßer Knopfzellen im Vergleich zu Standardzellen.

Figur 4 zeigt die Einstellung des internen Gasdrucks erfindungsgemäßer Knopfzellen bei verschiedenen Betriebszuständen.

Nach Figur 1 unterscheidet sich der erfindungsgemäße Akkumulator in seinem Aufbau nicht von einer konventionellen Ni/Hydrid-Knopfzelle mit dem Gehäusebecher 1, dem Deckel 2, dem Dichtring 3, der positiven Nickelhydroxidelektrode 4, der negativen Metallhydridelektrode 5, dem elektrolytgetränkten Separator 6, der Hilfselektrode 7 für den Sauerstoffverzehr und der Druckfeder 8.

Erfindungsgemäß und entgegen der konventionellen Ausführung ist die auf die negative Elektrode rückseitig aufgepreßte Hilfselektrode jedoch ebenfalls eine Legierungselektrode und aufgrund eines PTFE-Zusatzes stark hydrophob, während die negative Elektrode selbst hydrophil ist.

Die in Figur 2 vergrößert dargestellte Oberfläche der Hilfselektrode läßt einzelne Metallhydrid-Partikel 9 erkennen, die teils von einem Elektrolytfilm 10 benetzt sind, teils aber durch hydrophobes Bindemittel 11 (PTFE) mit Nachbarpartikeln verkittet sind und wegen der wasserabstoßenden Wirkung des Bindemittels große Teile ihrer Oberfläche von flüssigem Elektrolyt unbedeckt darbieten. An diesen Stellen kann H_2 leicht in das Innere der Partikel eindringen. Er wird vom Legierungsmetall absorbiert und so aus dem Gasraum entfernt.

Wiederum an anderen Stellen sind durch das gleichzeitige Vorhandensein von Elektrolyt, hydrophobem Bindemittel und freiliegender Partikeloberfläche die Voraussetzungen für einen O_2 -Verzehr günstig, weil dieser gemäß Gleichung (1) in der Einleitung nur unter Vermittlung von H_2O und im elektronischen Austausch mit der festen Legierungsphase (Dreiphasenbeziehung) möglich ist.

Die überlegene Hochstrombelastbarkeit von Knopfzellen, die mit erfindungsgemäßen negativen Elektroden unter Verwendung von Cu als Leitmittel und mit erfindungsgemäßen Hilfselektroden ausgestattet werden, geht aus Figur 3 hervor.

Die Masse-Zusammensetzungen der T-St-Elektroden lagen im Rahmen der oben angegebenen Rezepturen. Wie aus den Balkendarstellungen ersichtlich, lagen die Entladekapazitäten K (in % der Nennkapazität NC) erfindungsgemäßer Knopfzellen (B) bei den hohen Belastungen von 1CA und 2CA beträchtlich über den von fertigungsüblichen Standardzellen (A). Ein wesentlicher Grund für das bessere Hochstromverhalten der erfindungsgemäßen Zellen ist das Fehlen eines hydrophoben Binders in deren negativen Elektroden, was eine günstigere elektronische Leitfähigkeit bedingt.

Schließlich findet die Gasverzehr-Leistung der neuen Hilfselektrode in dem Verhalten des zellinternen Gasdrucks sowohl bei der Überladung als auch bei der Überentladung ihren Ausdruck. So liegt gemäß Figur 4 der Innendruck p [bar] einer 250mAh-Knopfzelle bei Überladung mit 0,2CA nur bei etwa 1 bar (Kurve 1). Im Falle einer Polumkehr übersteigt der Innendruck beim gleichen Strom kaum 3 bar (Kurve 2). Drücke von dieser Größe sind für die mechanische Stabilität von Knopfzellen unbedenklich.

Patentansprüche

1. Gasdicht verschlossener Metalloxid/Metallhydrid-Akkumulator mit im Zellengehäuse angeordneter positiver Elektrode, die ein Metalloxid umfaßt, einer negativen Elektrode, die eine Wasserstoffspeicherlegierung umfaßt, mit einem zwischen positiver und negativer Elektrode angeordneten Separator, der einen alkalischen Elektrolyten enthält, sowie mit einer den Sauerstoffverzehr unterhaltenden, elektrisch leitendem Kontakt zur negativen Elektrode stehenden Hilfselektrode, dadurch gekennzeichnet, daß die Hilfselektrode als den Gasverzehr bei Überladung und Umpolung unterhaltendes Mittel eine Wasserstoffspeicherlegierung enthält, und daß die Hilfselektrode mit der negativen Elektrode elektrisch leitend verbunden ist.
2. Gasdicht verschlossener Akkumulator nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Hilfselektrode an der Rückseite der negativen Elektrode unmittelbar anliegt.
3. Gasdicht verschlossener Akkumulator nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß dem Legierungsmaterial der Hilfselektrode ein hydrophober Binder und dem Legierungsmaterial der negativen Elektrode ein hydrophiler Binder zugesetzt ist.
4. Gasdicht verschlossener Akkumulator nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß dem Legierungsmaterial der negativen Elektrode wahlweise eines der Leitmittel Cu-Pulver, Ni-Pulver oder Graphit zugesetzt ist.
5. Gasdicht verschlossener Akkumulator nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß dem Legierungsmaterial der Hilfselektrode neben Graphit und Ruß PTFE als Bindemittel zugesetzt ist.
6. Gasdicht verschlossener Akkumulator nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die der Hilfselektrode zugrundeliegende Massemischung aus 0 bis 20 Gew.% Graphit, 0 bis 20 Gew.% Ruß, 0,5 bis 10 Gew.% PTFE, Rest bis 100 Gew.% Wasserstoffspeicherlegierung zusammengesetzt ist.
7. Gasdicht verschlossener Akkumulator nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß die der Hilfselektrode zugrundeliegende Massemischung aus 0 bis 4 Gew.% Graphit, 1 bis 3 Gew.% Ruß, 1 bis 4 Gew.% PTFE, Rest bis 100 Gew.% Wasserstoffspeicherlegierung zusammengesetzt ist.
8. Gasdicht verschlossener Akkumulator nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die der negativen Elektrode zugrundeliegende Massemischung aus 10 bis 50 Gew.% Cu oder Ni-Pulver; 0 bis 10 Gew.% hydrophilem Binder, Rest bis 100 Gew.% Wasserstoffspeicherlegierung besteht.
9. Gasdicht verschlossener Akkumulator nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die der negativen Elektrode zugrundeliegende Massemischung aus 20 bis 40 Gew.% Cu- oder Ni-Pulver, 1 bis 4 Gew.% hydrophilem Binder, Rest bis 100 Gew.% Wasserstoffspeicherlegierung besteht.
10. Gasdicht verschlossener Akkumulator nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die der negativen Elektrode zugrundeliegende Massemischung aus 0 bis 20 Gew.% Graphit, vorzugsweise 10 bis 15 Gew.% Graphit, 0 bis 10 Gew.%, vorzugsweise 0,5 bis 4 Gew.% hydrophilem Binder, Rest bis 100 Gew.% Wasserstoffspeicherlegierung besteht.

Fig. 2

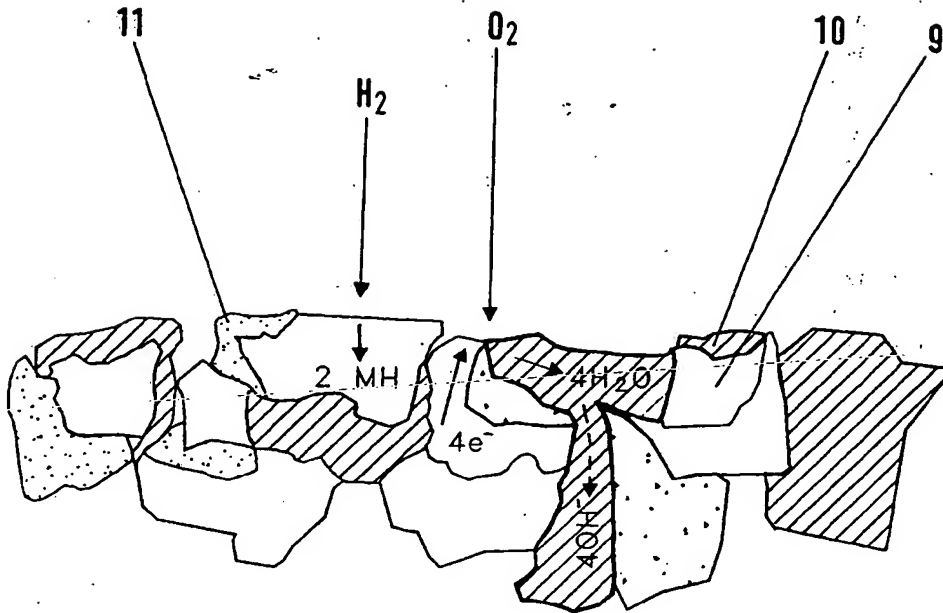


Fig. 1

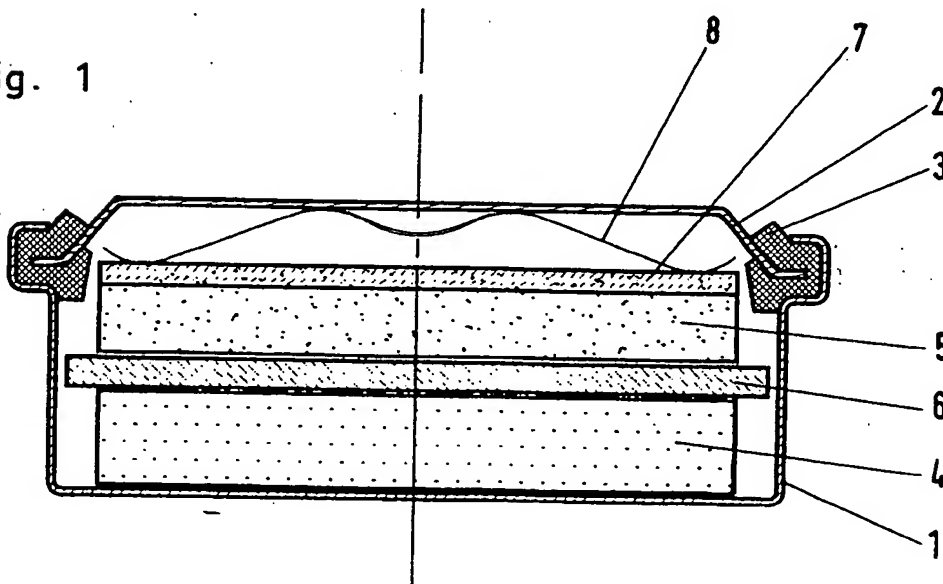


Fig. 3

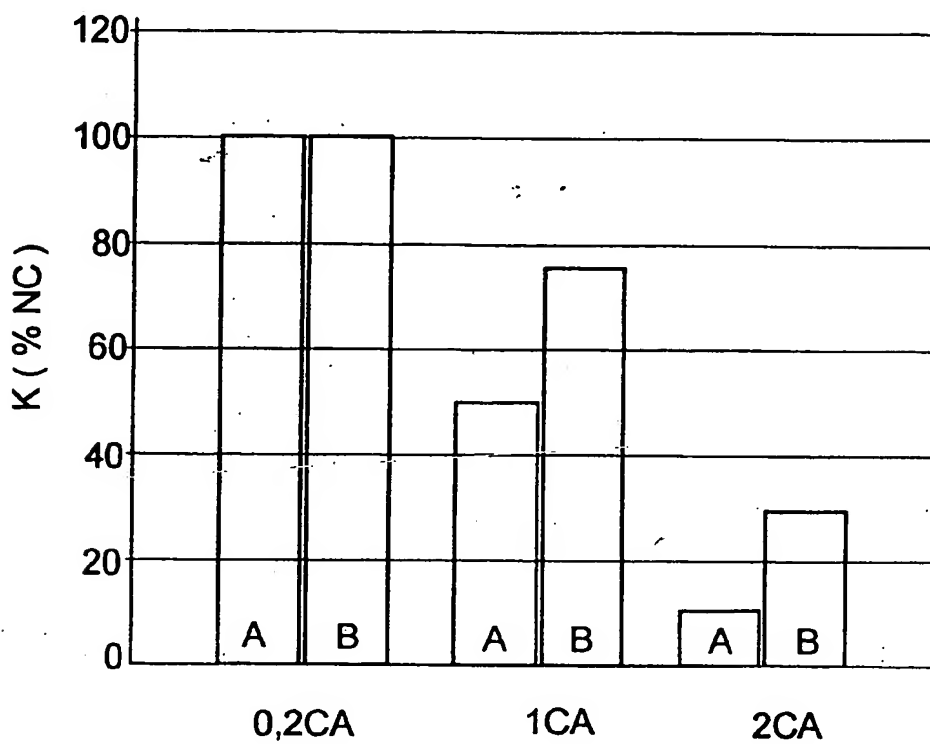
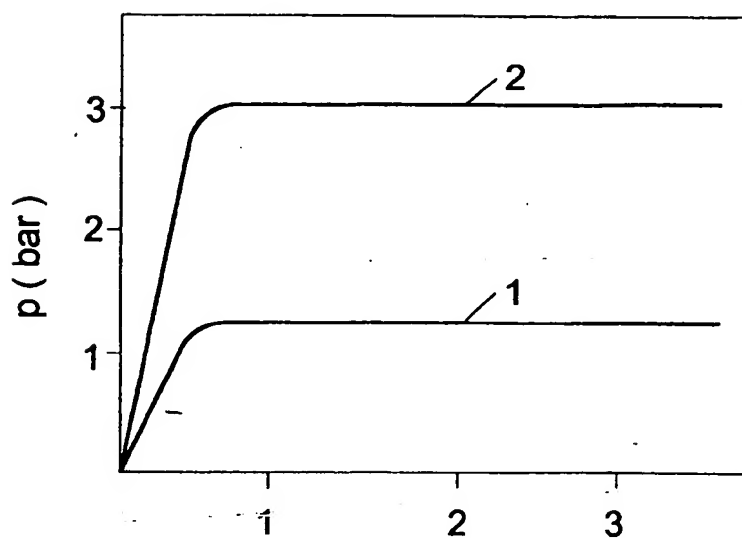


Fig. 4





Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung
EP 95 10 6832

EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int.Cl.6)
3 X	US-A-4 952 465 (HARRIS JONATHAN H ET AL) 28. August 1990 * Ansprüche 1-16 *	1	H01M10/52 H01M10/34 H01M4/24
3 A	EP-A-0 552 441 (VARTA BATTERIE) 28. Juli 1993 * Ansprüche 1-9 *	1-10	
3 A	EP-A-0 416 244 (VARTA BATTERIE) 13. März 1991 * Ansprüche 1-10 *	1-10	
2 A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 009 no. 263 (E-351), 19. Oktober 1985 & JP-A-60 109183 (MATSUSHITA DENKI SANGYO KK) 14. Juni 1985, * Zusammenfassung *	1-10	
			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int.Cl.6)
			H01M
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			
Recherchenort DEN HAAG		Abschließdatum der Recherche 24. November 1995	Prüfer Battistig, M
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : mündliche Offenbarung P : Zwischenliteratur T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument			

EPO FORM 150 (1.12.1994)